

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-178825

(43)Date of publication of application : 12.07.1996

(51)Int.CI.

G01N 15/02

(21)Application number : 06-324257

(71)Applicant : SHIMADZU CORP

(22)Date of filing : 27.12.1994

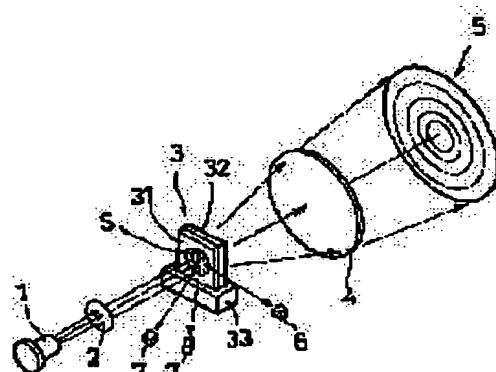
(72)Inventor : SHIMAOKA HARUO

## (54) APPARATUS FOR MEASURING DISTRIBUTION OF PARTICLE SIZES

### (57)Abstract:

**PURPOSE:** To measure the distribution of particle sizes while suppressing the error by measuring the distribution of the intensity of scattering light accurately without diluting a high concentration suspension of a sample and causing no multiple scattering.

**CONSTITUTION:** A sample cell 3 for containing a group of particles to be irradiated with laser light comprises two glass plates 31, 32, and a supporting member 33 for holding the glass plates detachably while intersecting the optical axis of laser light. A suspension S, where the group of particles to be measured are dispersed into a medium, is sandwiched by the two glass plates 31, 32 and held stationarily in place. The thin suspension layer is then irradiated with laser light thus preventing multiple scattering even for a high concentration suspension.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 30.10.1996

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 2910596

[Date of registration] 09.04.1999

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

**\* NOTICES \***

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

**CLAIMS**

---

**[Claim(s)]**

[Claim 1] In the equipment which measures the space intensity distribution of the diffraction/scattered light obtained by irradiating a laser beam at the measured particle group of a distributed condition, and computes the particle size distribution of a measured particle group from the measurement result The sample cell which holds a measured particle group that a laser beam should be irradiated consists of a glass plate of two sheets, and supporter material supported free [ attachment and detachment ] in the condition of having made these crossing to the optical axis of an exposure laser beam. Between the glass plate of two sheets The particle-size-distribution measuring device characterized by holding statically where the suspension which a measured particle group comes to distribute in a medium is put.

---

[Translation done.]

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

**\* NOTICES \***

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.\*\*\*\* shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

---

**DETAILED DESCRIPTION**

---

**[Detailed Description of the Invention]****[0001]**

**[Industrial Application]** Especially this invention relates to the particle-size-distribution measuring device suitable for measuring the particle size distribution of a sample which the particle is distributing by high concentration in a medium about the particle-size-distribution measuring device of laser diffraction / dispersion type.

**[0002]**

**[Description of the Prior Art]** In the particle-size-distribution measuring device of laser diffraction / dispersion type, while measuring the space intensity distribution of the diffraction/scattered light generated by irradiating a laser beam at the particle group of a distributed condition, the measurement result is converted into the particle size distribution of a sample particle group based on the Fraunhofer diffraction theory or the Mie-scattering theory.

**[0003]** That is, if a laser beam is irradiated at a particle, laser beams will be diffracted or scattered about by the particle. The intensity-distribution pattern of its diffraction/scattered light changes with the magnitude of a particle. The particle-size-distribution measuring device of laser diffraction / dispersion type is a thing using such a principle, and computes the particle size distribution of a particle group by measuring the space intensity distribution of the diffraction/scattered light obtained by irradiating a laser beam at the particle group of a distributed condition. Since, as for an actual particle group, a different particle of magnitude is intermingled, the intensity-distribution pattern of the diffraction/scattered light by the particle group serves as superposition of the diffraction/scattered light from each particle.

**[0004]** In actual equipment, as the example of a fundamental configuration is typically shown in drawing 7 With a collimator 72, make output light from a laser light source 71 into the parallel flux of light, and it is irradiated at the particle group of a distributed condition. While the diffraction/scattered light to the front condense with a lens 73 among the diffraction/scattered light by the particle group and makes ring-like diffraction/dispersion image connect to the location of the focal distance, in the location The ring detector 74 which is the aggregate of a photosensor with two or more light-receiving sides of the shape of the shape of a ring with a mutually different radius and a half-ring is arranged, and the optical reinforcement for whenever [ in the front predetermined include-angle range / diffraction / whenever / diffusion angle / every ] is measured. Moreover, the side-way scattering photosensor 75 and the back scattered light sensor 76 which became independent, respectively detect the scattered light to the side and back.

**[0005]** Thus, the space intensity distribution of the obtained diffraction/scattered light are **[0006]**, when each diffraction/scattered light from the particle of a large number from which magnitude differs make it pile each other up as described above and this is expressed by the matrix (matrix).

**[Equation 1]**

$$\mathbf{s} = \mathbf{A} \mathbf{q} \quad \cdots \cdots (1)$$

ただし、 $\mathbf{s}$  は光強度分布ベクトル、 $\mathbf{q}$  は粒度分布（頻度分布%）、  
 $\mathbf{A}$  は変換係数行列で、

$$\mathbf{s} = \begin{vmatrix} s_1 \\ s_2 \\ \vdots \\ s_i \\ \vdots \\ s_m \end{vmatrix}, \quad \mathbf{q} = \begin{vmatrix} q_1 \\ q_2 \\ \vdots \\ q_j \\ \vdots \\ q_n \end{vmatrix} \quad \cdots \cdots (2)$$

$$\mathbf{A} = \begin{vmatrix} a_{1,1} & a_{1,2} & \cdots & \cdots & a_{1,n} \\ \vdots & \vdots & & & \vdots \\ \vdots & a_{i,1} & & \cdots & \vdots \\ \vdots & \vdots & & & \vdots \\ \vdots & a_{m,1} & a_{m,2} & & a_{m,n} \end{vmatrix} \quad \cdots \cdots (3)$$

[0007] It becomes. Each element  $s_i$  ( $i = 1, 2, \dots, m$ ) of an optical intensity-distribution vector is the amount of incident light to each photosensor component diffraction / for scattered-light detection on the strength put on the front, the side, etc. Moreover, each element  $q_j$  ( $j = 1, 2, \dots, n$ ) of a particle-size-distribution vector While making the particle-size-distribution range into finite and doing  $n$  division of within the limits of this, when it sets  $d_1$  and the minimum value to  $d_{n+1}$  for maximum and each division section  $[d_j, d_{j+1}]$  is represented with one particle diameter  $x_j$  ( $j = 1, 2, \dots, n$ ), it is each of that particle diameter  $x_j$ . It corresponds and is [0008].

#### [Equation 2]

$$\sum q_j = 100 \text{ (%)} \quad \cdots \cdots (4)$$

[0009] It is the relative particle weight (%) which was normalized (normalizing) and expressed that it becomes. A coefficient matrix  $A$  (matrix) is a coefficient matrix which changes particle size distribution  $q$  (vector) into the optical intensity distribution  $s$  (vector). The physical semantics of each of those elements  $a_{ij}$  and  $j$  ( $i = 1, 2, \dots, m$ ,  $j = 1, 2, \dots, n$ ) Particle diameter  $x_j$  It is the optical reinforcement which detected the light diffracted / scattered about by the particle group of unit particle weight with the  $i$ -th component from what was most put on the side whenever [corniculus] among the sensor groups for measuring optical intensity distribution. This  $a_{ij}$  and  $j$  A numeric value is theoretically calculable. When particle diameter is large enough compared with the wavelength of a laser beam used as the light source, the Fraunhofer diffraction theory is used for this. However, particle diameter needs to use the Mie-scattering theory in the submicron field where particle diameter is smaller than laser wavelength, an EQC, and it. It is possible that the Fraunhofer diffraction theory is the approximation particle diameter was excellent in whose Mie-scattering theory effective when sufficiently large compared with wavelength in front minute angle dispersion.

[0010] However, in order to calculate the element of a coefficient matrix  $A$  (matrix) using the Mie-scattering theory, it is necessary to set up the refractive index of the medium which distributes a particle and it. Now, it is [0011] when the formula which calculates the least square solution of the particle-size-distribution vector  $q$  based on (1) type is derived.

#### [Equation 3]

$$\mathbf{q} = (\mathbf{A}^T \mathbf{A})^{-1} \mathbf{A}^T \mathbf{s} \quad \cdots \cdots (5)$$

ただし、 $\mathbf{A}^T$  は  $\mathbf{A}$  の転置行列で、 $(\ )^{-1}$  は逆行列である。

[0012] \*\*\*\*\*. This coefficient matrix A (matrix) is calculable beforehand based on the Fraunhofer diffraction theory or the Mie-scattering theory, as described above, and since each element of the optical intensity distribution s in the right-hand side of (5) types (vector) is the quantity of light surveyed by the photosensor, it is clear that its particle size distribution q (vector) can be found using these.

[0013] Although the above is a particle-size-distribution measurement principle by the method of laser diffracting / being scattered about, it is an example of the count approach, various variations exist, and having been shown here has various variations also in a sensor, the class of detector, or arrangement.

[0014] And in this kind of measuring device, usually a sample particle group is distributed in a suitable medium, it is made the shape of suspension, and a laser beam is irradiated. Moreover, it is common that the sample itself dilutes with a suspension-like thing directly or suitably to the sample, and it already irradiates a laser beam. Moreover, the exposure of the laser beam to suspension is in the condition of having made suspension flowing in a flow cell, or where suspension is held into a container-like batch cel, it is performed.

[0015]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] By the way, in this kind of measuring device, it is necessary to make concentration of the particle group in suspension below into the fixed concentration which exists since multiple scattering is not produced. As typically shown in drawing 8, multiple scattering is the phenomenon in which the light diffracted or scattered about by one particle is again scattered about by another particle, and when suspension concentration is too high, it is generated. If such multiple scattering arises, the particle size distribution computed based on the space intensity distribution of the obtained diffraction/scattered light cannot express correctly the particle size distribution of the truth of a sample particle group with a natural thing.

[0016] In order to avoid generating of such multiple scattering, concentration of the suspension which irradiates a laser beam is made below into fixed concentration, but after the sample itself has already diluted with a suspension-like thing by the suitable medium in this case, it is necessary to irradiate a laser beam. However, it was made difficult by diluting depending on the class of sample, for example like ink for particle size distribution to change and to measure exact particle size distribution about such a sample depending on the particle-size-distribution measuring device of the conventional laser diffraction / dispersion type.

[0017] This invention aims at offer of the equipment which can perform exact particle-size-distribution measurement, without moreover producing multiple scattering, without having been made in view of such the actual condition, and diluting high-concentration sample suspension.

[0018]

[Means for Solving the Problem] In order to attain the above-mentioned purpose, the particle-size-distribution measuring device of this invention In the equipment which measures the space intensity distribution of the diffraction/scattered light obtained by irradiating a laser beam at the measured particle group of a distributed condition, and computes the particle size distribution of a measured particle group from the measurement result As shown in drawing 1 and drawing 2 which are an example drawing, the sample cell 3 which holds a measured particle group that a laser beam should be irradiated The glass plates 31 and 32 of two sheets, The supporter material 33 supported free [ attachment and detachment ] constitutes from the condition of having made these crossing to the optical axis of an exposure laser beam, and it characterizes by holding statically, where the suspension S which a measured particle group comes to distribute in a medium is put among the glass plates 31 and 32 of two sheets.

[0019]

[Function] Although it is the phenomenon scattered about again and is greatly influenced by suspension concentration by particle with the diffraction/scattered light another as described above by one particle, the more the optical path length in the suspension which a laser beam passes becomes short, even if multiple scattering is the same suspension concentration the more, the probability for multiple scattering to occur becomes small. This invention uses this

point.

[0020] If this is arranged so that the optical axis of an exposure laser beam may be crossed where sample suspension is put among the glass plates 31 and 32 of two sheets, \*\*\*\*\* and, as shown in drawing 3, a laser beam will pass through the inside of a very thin suspension layer, and even if it is high-concentration suspension, a possibility of producing multiple scattering will disappear.

[0021]

[Example] Drawing 1 is the mimetic diagram showing the configuration of the measuring beam study system of this invention example. The output light from a laser light source 1 is in the condition made into the parallel flux of light by the collimator 2, and is irradiated by the sample suspension S in the sample cell 3 of the structure mentioned later. While the condenser lens 4 is arranged on both sides of the sample cell 3 on the optical axis of the laser beam of the opposite side of a laser light source 1, the ring detector 5 equivalent to the former for measuring the intensity distribution of front diffraction / scattered light is arranged in the focal location of the condenser lens 4. Moreover, the side and behind (laser light source 1 side) the sample cell 3, the side-way scattering photosensor 6 and the back scattered light sensor 7 for measuring side-way scattering light and a back scattered light, respectively are arranged.

[0022] After the output of each sensor of the ring detector 5, the side-way scattering photosensor 6, and the back scattered light sensor 7 is amplified by the amplifier, respectively, it is digitized by the A-D converter, is taken by the computer (neither is illustrated), and is converted into the particle size distribution of a measured particle group by the well-known algorithm.

[0023] Drawing 2 is the decomposition perspective view of the sample cell 3 which is the description part of this invention example. The sample cell 3 is constituted by the supporter material 33 supported in the thin glass plates 31 and 32 of two sheets, and the condition of having made these intersecting the optical axis of the laser beam which passed through the collimator 2. And the sample suspension S is statically held on the optical axis of a laser beam in the condition of having been put among the glass plates 31 and 32 of two sheets, and measurement of diffraction / scattered-light intensity distribution is presented with it.

[0024] In this example, the method of setting the sample suspension S to a measurement part as mentioned above is in the condition which decomposed the sample cell 3 and put one glass plate 31 on the abbreviation horizontal first, and after only small quantity trickles the sample suspension S into that front face, it piles up the glass plate 32 of another side from on that. Since it will be in the condition that the glass plates 31 and 32 of these two sheets adhered mutually with the surface tension of the medium in the sample suspension S at this time, the supporter material 33 is equipped with this, and it arranges so that the optical axis of a laser beam may be intersected like drawing 1. At this time, the concentration of the sample suspension S puts among glass plates 31 and 32, without diluting this, even when fairly high.

[0025] Thus, if a laser beam is irradiated where the sample suspension S is put among the thin glass plates 31 and 32 of two sheets, since the sample suspension S is a film extremely, the optical path length in the inside of the sample suspension of a laser beam becomes very short. Therefore, even if it uses the high-concentration sample suspension S as it is, multiple scattering is not produced as typically shown in drawing 3.

[0026] When the particle diameter of for example, a measured particle is comparatively large, a spacer suitable among the glass plates 31 and 32 of two sheets may be made to intervene here to obtain diffraction / scattered-light reinforcement with the concentration of the sample suspension S sufficient so high rather. Drawing 4 is the explanatory view of the example of structure of the sample cell between which the spacer was made to be placed, and (A) is the front view which a sectional view, (B), and (C) extract the spacer 34, and is shown, and its C-C sectional view. this example — metaphor thickness — bore 34a was dug into the central part of the thin spacer 34 of about 0.1–1mm of mackerel, and where that spacer 34 is put among glass plates 31 and 32, the sample suspension S is put between the glass plate 31 of two sheets, and 32 within bore 34a of that spacer 34.

[0027] Since glass plates 31 and 32 and both the spacer 34 are fixed, a metaphor may sandwich

a part for the vertical both ends of glass plates 31 and 32 from both sides with a screw 36 through the plate 35 for immobilization so that a laser beam may not be interrupted, so that it may not lap with bore 34a therefore, as given adhesiveness to the front face of the both sides of a spacer 34 or shown to drawing 5 in a sectional view.

[0028] In each above example, as for the include angle of a sample cell 3 and a laser beam shaft to make, it is desirable to make it incline for a while so that it may illustrate with a flat-surface sectional view to drawing 6 rather, rather than perpendicular. Namely, although exact detection of side-way scattering light (it is the scattered light to a perpendicular direction to a laser beam shaft) especially becomes difficult when it intersects perpendicularly with a laser beam shaft, and the sample cell 3 has been arranged, and making a spacer 34 intervene By giving an inclination like drawing 6, it leads to exact detection of side-way scattering light being attained, and this becoming possible [ measuring more the particle size distribution of the fairly small particle group of a submicron field to high degree of accuracy ].

[0029] Moreover, the supporter material 33 in each above example supports these, the glass plates 31 and 32 of two sheets, or where the plate 35 grade for immobilization is only put between spacer 34 list in addition to this, and also it is natural. [ of deformation of the approach of pushing glass plates 31 and 32 or the plate 35 for immobilization with a stop screw etc. from the side etc. being possible ]

[0030]

[Effect of the Invention] As explained above, according to this invention, the sample cell in the particle-size-distribution measuring device of laser diffraction / dispersion type The glass plate of two sheets, The supporter material supported free [ attachment and detachment ] constitutes from the condition of having made these intersecting the optical axis of an exposure laser beam. Since a laser beam is irradiated where sample suspension is put between the glass plate of two sheets In the conventional particle-size-distribution measuring device using a flow cell or a batch cel, generating of multiple scattering enabled it to measure diffraction / scattered-light intensity distribution correctly in the high-concentration state, without producing multiple scattering, without completely diluting the high-concentration suspension sample which was not able to be measured. Like as a result, for example, ink, the dispersoid distributed by dilution, or it collapsed, or condensed, and if it remained as it is, high-concentration sample suspension which multiple scattering produces also became possible [ performing exact particle-size-distribution measurement ].

---

[Translation done.]

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-178825

(43)公開日 平成8年(1996)7月12日

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

G 0 1 N 15/02

識別記号

府内整理番号

A

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数1 O L (全 6 頁)

(21)出願番号 特願平6-324257

(22)出願日 平成6年(1994)12月27日

(71)出願人 000001993

株式会社島津製作所

京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地

(72)発明者 島岡 治夫

京都府京都市北区紫野西御所田町1番地

株式会社島津製作所紫野工場内

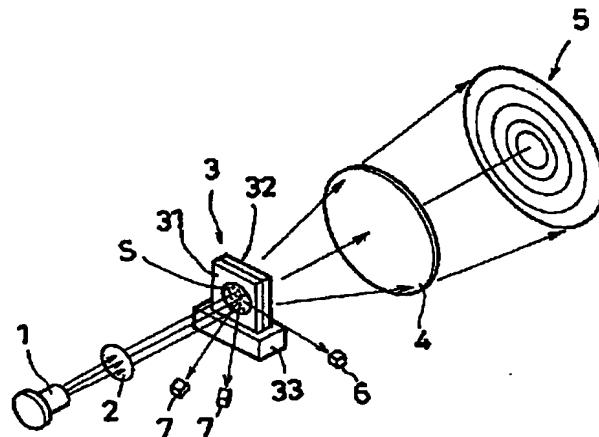
(74)代理人 弁理士 西田 新

(54)【発明の名称】 粒度分布測定装置

(57)【要約】

【目的】 高濃度の試料懸濁液を希釈することなく、しかも多重散乱を生じさせることなく、正確に散乱光強度分布を測定して誤差の少ない粒度分布測定を行うことのできる粒度分布測定装置を提供する。

【構成】 レーザ光を照射すべく被測定粒子群を収容する試料セル3を、2枚のガラス板31, 32と、これらを照射レーザ光の光軸に交差させた状態で着脱自在に保持する支持部材33によって構成し、その2枚のガラス板31, 32の間に、被測定粒子群が媒液中に分散してなる懸濁液Sを挟み込んだ状態で静的に保持するように構成し、薄い懸濁液層にレーザ光を照射することによって高濃度懸濁液でも多重散乱を生じさせないようにする。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 分散状態の被測定粒子群にレーザ光を照射することによって得られる回折／散乱光の空間強度分布を測定し、その測定結果から被測定粒子群の粒度分布を算出する装置において、レーザ光を照射すべく被測定粒子群を収容する試料セルが、2枚のガラス板と、これらを照射レーザ光の光軸に対して交差させた状態で着脱自在に支持する支持部材とからなり、その2枚のガラス板の間に、被測定粒子群が媒液中に分散してなる懸濁液を挟み込んだ状態で静的に保持することを特徴とする粒度分布測定装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明はレーザ回折／散乱式の粒度分布測定装置に関し、特に、粒子が媒液中に高濃度で分散しているような試料の粒度分布を測定するのに適した粒度分布測定装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 レーザ回折／散乱式の粒度分布測定装置においては、分散状態の粒子群にレーザ光を照射することによって発生する回折／散乱光の空間強度分布を測定するとともに、その測定結果をフラウンホーファ回折理論またはミー散乱理論に基づいて試料粒子群の粒度分布に換算する。

【0003】 すなわち、粒子にレーザ光を照射すると、レーザ光はその粒子によって回折または散乱する。その回折／散乱光の強度分布パターンは、粒子の大きさによ\*

$$\mathbf{s} = \mathbf{A} \mathbf{q} \quad \cdots \cdots (1)$$

ただし、 $\mathbf{s}$  は光強度分布ベクトル、 $\mathbf{q}$  は粒度分布（頻度分布%）、

$\mathbf{A}$  は変換係数行列で、

$$\mathbf{s} = \begin{vmatrix} s_1 \\ s_2 \\ \vdots \\ s_i \\ \vdots \\ s_m \end{vmatrix}, \quad \mathbf{q} = \begin{vmatrix} q_1 \\ q_2 \\ \vdots \\ q_j \\ \vdots \\ q_n \end{vmatrix} \quad \cdots \cdots (2)$$

$$\mathbf{A} = \begin{vmatrix} a_{1,1} & a_{1,2} & \cdots & \cdots & a_{1,n} \\ \vdots & & & & \vdots \\ \vdots & & a_{j,j} & & \vdots \\ \vdots & & & & \vdots \\ a_{m,1} & a_{m,2} & & & a_{m,n} \end{vmatrix} \quad \cdots \cdots (3)$$

【0007】 となる。光強度分布ベクトルの各要素  $s_i$  ( $i = 1, 2, \dots, m$ ) は、前方、側方等に置かれた回

\*って変化する。レーザ回折／散乱式の粒度分布測定装置はこのような原理を利用したもので、分散状態の粒子群にレーザ光を照射することによって得られる回折／散乱光の空間強度分布を測定することによって、粒子群の粒度分布を算出する。実際の粒子群は、大きさの異なる粒子が混在しているため、粒子群による回折／散乱光の強度分布パターンは、それぞれの粒子からの回折／散乱光の重ね合わせとなる。

【0004】 実際の装置においては、図7にその基本的構成例を模式的に示すように、レーザ光源71からの出力光をコリメータ72によって平行光束にして分散状態の粒子群に照射し、粒子群による回折／散乱光のうち、前方への回折／散乱光はレンズ73によって集光してその焦点距離の位置にリング状の回折／散乱像を結ばせるとともに、その位置には、互いに異なる半径を持つリング状ないしは半リング状の複数の受光面を持つ光センサの集合体であるリングデテクタ74を配置して、前方所定角度範囲における回折／散乱角度ごとの光強度を測定する。また、側方および後方への散乱光は、それぞれ独立した側方散乱光センサ75および後方散乱光センサ76によって検出する。

【0005】 このようにして得られた回折／散乱光の空間強度分布は、前記したように大きさの異なる多数の粒子からのそれぞれの回折／散乱光の重ね合わせたものであって、これをマトリクス（行列）で表現すると、

## 【0006】

## 【数1】

折／散乱光強度検出用の各光センサ素子への入射光量で50ある。また、粒度分布ベクトルの各要素  $q_j$  ( $j = 1,$

2, ..., n) は、粒度分布範囲を有限とし、この範囲内をn分割するとともに、最大値をd<sub>1</sub>、最小値をd<sub>m</sub>とし、それぞれの分割区間 [d<sub>j</sub>, d<sub>j+1</sub>] を一つの粒子径x<sub>j</sub> (j = 1, 2, ..., n) で代表させたとき、その各粒子径x<sub>j</sub>に対応して

【0008】

【数2】

$$\sum q_j = 100 (\%) \quad \dots \dots (4)$$

【0009】となるように正規化(ノルマライズ)して表した相対粒子量(%)である。係数行列A(マトリクス)は、粒度分布q(ベクトル)を、光強度分布s(ベクトル)に変換する係数行列であり、その各要素a<sub>ij</sub> (i = 1, 2, ..., m, j = 1, 2, ..., n) の物理的意味は、粒子径x<sub>j</sub>の単位粒子量の粒子群によって回折/散乱した光を、光強度分布を測定するためのセンサ群のうち、最も小角度側に置かれたものから1番目の素子\*

$$q = (A^T A)^{-1} A^T s \quad \dots \dots (5)$$

ただし、A<sup>T</sup>はAの転置行列で、( )<sup>-1</sup>は逆行列である。

【0012】が得られる。この係数行列A(マトリクス)は前記したようにフラウンホーファ回折理論あるいはミー散乱理論に基づいてあらかじめ計算しておくことができ、(5)式の右辺における光強度分布s(ベクトル)の各要素は光センサにより実測された光量であるから、これらを用いて粒度分布q(ベクトル)が求まるることは明らかである。

【0013】以上がレーザ回折/散乱法による粒度分布測定原理であるが、ここで示したのはその計算方法の一例であり、この他にも様々なバリエーションが存在し、また、センサやデテクタの種類や配置にも様々なバリエーションがある。

【0014】そしてこの種の測定装置では、通常、試料粒子群を適当な媒液中に分散させ、懸濁液状にしてレーザ光を照射する。また、試料そのものが既に懸濁液状のものでは、その試料に対して直接的に、あるいは適当に希釈してレーザ光を照射することが一般的である。また、懸濁液へのレーザ光の照射は、懸濁液をフローセル中に流動させた状態で、あるいは容器状のバッчセル中に懸濁液を収容した状態で行われる。

【0015】

【発明が解決しようとする課題】ところで、この種の測定装置においては、懸濁液中の粒子群の濃度は、多重散乱を生じさせないためにある一定の濃度以下とする必要がある。多重散乱は、図8に模式的に示すように、一つの粒子によって回折または散乱した光が、別の粒子によって再度散乱する現象であり、懸濁液濃度が高すぎる場合に発生する。このような多重散乱が生じると、得られた回折/散乱光の空間強度分布に基づいて算出された粒度分布は、当然のことながら試料粒子群の真の粒度分布を正確に表すものとはなり得ない。

\*で検出した光強度である。このa<sub>ij</sub>の数値は、理論的に計算することができる。これには、光源となるレーザ光の波長に比べて粒子径が十分に大きい場合には、フラウンホーファ回折理論を用いる。しかし、粒子径が粒子径がレーザ波長と同等か、それより小さいサブミクロンの領域では、ミー散乱理論を用いる必要がある。フラウンホーファ回折理論は、前方微小角散乱において、粒子径が波長に比べて十分大きい場合に有効なミー散乱理論の優れた近似であると考えることができる。

【0010】ただし、ミー散乱理論を用いて係数行列A(マトリクス)の要素を計算するためには、粒子およびそれを分散させる媒液の屈折率を設定する必要がある。さて、(1)式に基づいて粒度分布ベクトルqの最小自乗解を求める式を導出すると、

【0011】

【数3】

【0016】このような多重散乱の発生を回避するため、レーザ光を照射する懸濁液の濃度を一定濃度以下にするわけであるが、この場合、試料そのものが既に懸濁液状のものでは、適当な媒液によって希釈した状態でレーザ光を照射する必要がある。しかし、試料の種類によっては、例えばインクのように、希釈することによって粒度分布が変化してしまう場合があり、このような試料については、従来のレーザ回折/散乱式の粒度分布測定装置によっては正確な粒度分布を測定することが困難であるとされていた。

【0017】本発明はこのような実情に鑑みてなされたもので、高濃度の試料懸濁液を希釈することなく、しかも多重散乱を生じさせることなく、正確な粒度分布測定を行うことのできる装置の提供を目的としている。

【0018】

【課題を解決するための手段】上記の目的を達成するため、本発明の粒度分布測定装置は、分散状態の被測定粒子群にレーザ光を照射することによって得られる回折/散乱光の空間強度分布を測定し、その測定結果から被測定粒子群の粒度分布を算出する装置において、実施例図

面である図1、図2に示すように、レーザ光を照射すべく被測定粒子群を収容する試料セル3を、2枚のガラス板31、32と、これらを照射レーザ光の光軸に対して交差させた状態で着脱自在に支持する支持部材33によって構成し、その2枚のガラス板31、32の間に、被測定粒子群が媒液中に分散してなる懸濁液Sを挟み込んだ状態で静的に保持することによって特徴づけられる。

【0019】

【作用】多重散乱は、前記したように一つの粒子による回折/散乱光が別の粒子によって再度散乱される現象であり、懸濁液濃度に大きく影響されるが、レーザ光が通

過する懸濁液中の光路長が短くなればなるほど、同じ懸濁液濃度であっても多重散乱が発生する確率は小さくなる。本発明はこの点を利用したものである。

【0020】すわなち、2枚のガラス板31、32の間に試料懸濁液を挟み込んだ状態で、これを照射レーザ光の光軸に交わるように配置すれば、図3に示すように極めて薄い懸濁液層中をレーザ光が通過することになり、高濃度の懸濁液であっても多重散乱を生じる恐れがなくなる。

#### 【0021】

【実施例】図1は本発明実施例の測定光学系の構成を示す模式図である。レーザ光源1からの出力光はコリメータ2によって平行光束にされた状態で、後述する構造の試料セル3中の試料懸濁液Sに照射される。試料セル3を挟んでレーザ光源1の反対側のレーザ光の光軸上には集光レンズ4が配設されているとともに、その集光レンズ4の焦点位置には、前方回折／散乱光の強度分布を測定するための従来と同等のリングデテクタ5が配設されている。また、試料セル3の側方および後方（レーザ光源1側）には、それぞれ側方散乱光および後方散乱光を測定するための側方散乱光センサ6および後方散乱光センサ7が配置されている。

【0022】リングデテクタ5の各センサと側方散乱光センサ6および後方散乱光センサ7の出力は、それぞれ増幅器によって増幅された後、A-D変換器によってデジタル化され、コンピュータ（いずれも図示せず）に採り込まれて、公知のアルゴリズムによって被測定粒子群の粒度分布に換算される。

【0023】図2は本発明実施例の特徴部分である試料セル3の分解斜視図である。試料セル3は、2枚の薄いガラス板31および32と、これらをコリメータ2を経たレーザ光の光軸に交差させた状態で支持する支持部材33によって構成されている。そして、試料懸濁液Sは、2枚のガラス板31と32の間に挟み込まれた状態でレーザ光の光軸上に静的に保持されて回折／散乱光強度分布の測定に供される。

【0024】この例において、以上のように試料懸濁液Sを測定箇所にセットする仕方は、まず、試料セル3を分解して一方のガラス板31を略水平に置いた状態で、その表面に試料懸濁液Sを少量だけ滴下した後、その上から他方のガラス板32を重ねる。このとき、試料懸濁液S中の媒液の表面張力により、これら2枚のガラス板31、32は相互に付着した状態となるから、これを支持部材33に装着して、図1のようにレーザ光の光軸に交差するように配置する。このとき、試料懸濁液Sの濃度が相当に高い場合でも、これを希釈せずにガラス板31、32の間に挟み込む。

【0025】このように2枚の薄いガラス板31、32の間に試料懸濁液Sを挟み込んだ状態でレーザ光を照射すると、試料懸濁液Sが極めて薄い層になっているた

め、レーザ光の試料懸濁液中での光路長が極めて短くなる。従って、高濃度の試料懸濁液Sをそのまま用いても、図3に模式的に示すように多重散乱は生じない。

【0026】ここで、例えば被測定粒子の粒子径が比較的大きい場合、あるいは試料懸濁液Sの濃度がそれほど高くなく、むしろ十分な回折／散乱光強度を得たい場合には、2枚のガラス板31と32の間に適当なスペーサを介在させてもよい。図4はスペーサを介在させた試料セルの構造例の説明図で、(A)は断面図、(B)および(C)はそのスペーサ34を抽出して示す正面図およびそのC-C断面図である。この例では、例え厚さば0.1~1mm程度の薄いスペーサ34の中央部分に透孔34aを穿ち、そのスペーサ34をガラス板31と32の間に挟み込んだ状態で、そのスペーサ34の透孔34a内で試料懸濁液Sを2枚のガラス板31、32間で挟み込んでいる。

【0027】ガラス板31、32とスペーサ34との相互の固定するために、例えはスペーサ34の両側の表面に粘着性を持たせてもよいし、あるいは、図5に断面図で示すように、透孔34aに重ならないように、従ってレーザ光を遮らないように、ガラス板31、32の上下両端部分を、固定用板35を介してネジ36で両側から挟み付けてもよい。

【0028】以上の各例において、試料セル3とレーザ光軸とのなす角度は、垂直とするよりも、むしろ図6に平面断面図で示すように、少し傾斜させることが望ましい。すなわち、試料セル3をレーザ光軸に直交して配置した場合には、特にスペーサ34を介在させる場合において側方散乱光（レーザ光軸に対して垂直方向への散乱光）の正確な検出が困難となるが、図6のように傾斜を与えることによって、側方散乱光の正確な検出が可能となり、このことはサブミクロン領域の非常に小さい粒子群の粒度分布をより高精度に計測することが可能となることに繋がる。

【0029】また、以上の各例における支持部材33は、2枚のガラス板31、32、あるいはこれに加えてスペーサ34並びに固定用板35等を単に挟み込んだ状態でこれらを支持するほか、ガラス板31、32もしくは固定用板35をその側方から止めネジ等によって押しつける方法等の変形が可能であることは勿論である。

#### 【0030】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、レーザ回折／散乱式の粒度分布測定装置における試料セルを、2枚のガラス板と、これらを照射レーザ光の光軸に交差させた状態で着脱自在に支持する支持部材によって構成し、その2枚のガラス板の間に試料懸濁液を挟み込んだ状態でレーザ光を照射するから、フローセルまたはパッチセルを用いた従来の粒度分布測定装置では多重散乱の発生によって測定が不可能であった高濃度の懸濁液試料を、全く希釈することなく高濃度のまままで、多重

散乱を生じさせずに正確に回折／散乱光強度分布を測定することが可能となった。その結果、例えばインクのように、希釈により分散質が分散したり崩壊し、あるいは凝集してしまい、かつ、そのままでは多重散乱が生じてしまうような高濃度の試料懸濁液でも正確な粒度分布測定を行うことが可能となった。

## 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明実施例の全体構成図で、測定光学系の模式図と電気系のブロック図とを併記して示す図

【図2】その試料セル3の分解斜視図

【図3】本発明実施例の作用説明図

【図4】本発明の他の実施例の試料セルの構造説明図

【図5】本発明の更に他の実施例の試料セルの構造説明図

【図6】本発明の各実施例の試料セル3のレーザ光軸に対する配置例の説明図

\* 【図7】レーザ回折／散乱式粒度分布測定装置の基本的構成を示す模式図

【図8】高濃度懸濁液にレーザ光を照射したときに生じる多重散乱の説明図

## 【符号の説明】

1 レーザ光源

2 コリメータ

3 試料セル

31, 32 ガラス板

10 33 支持部材

34 スペーサ

34a 透孔

4 集光レンズ

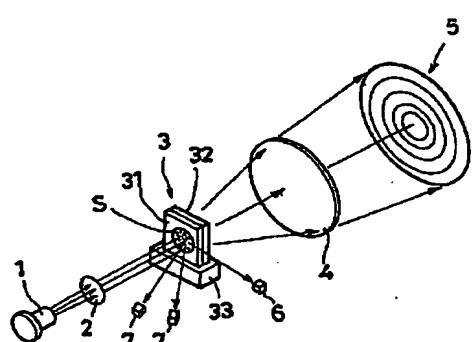
5 リングデテクタ

6 側方散乱光センサ

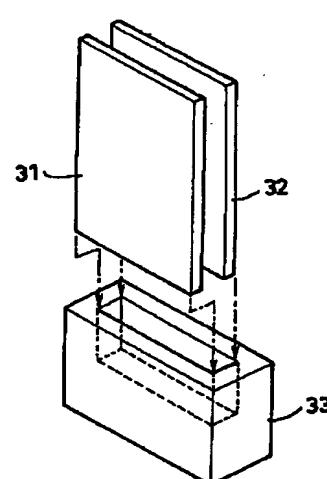
7 後方散乱光センサ

\*

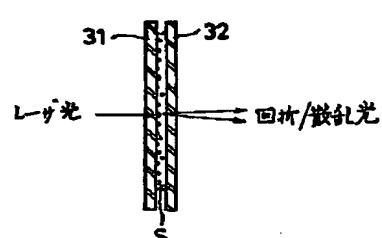
【図1】



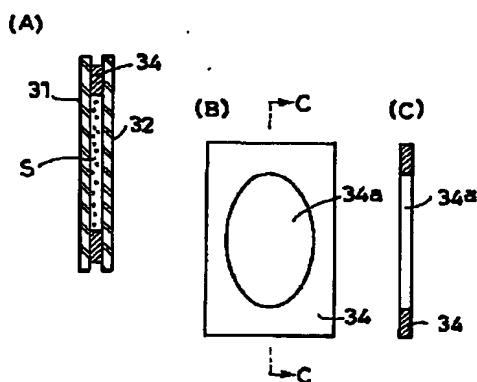
【図2】



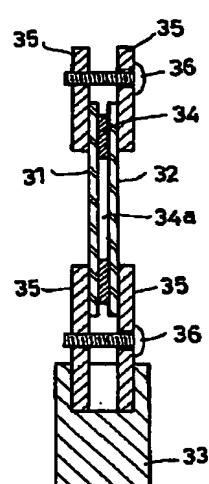
【図3】



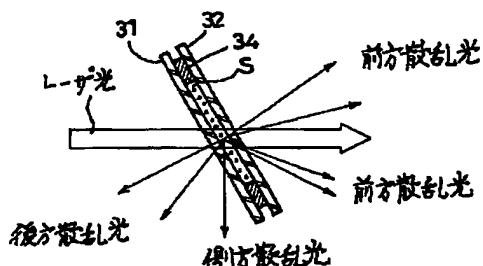
【図4】



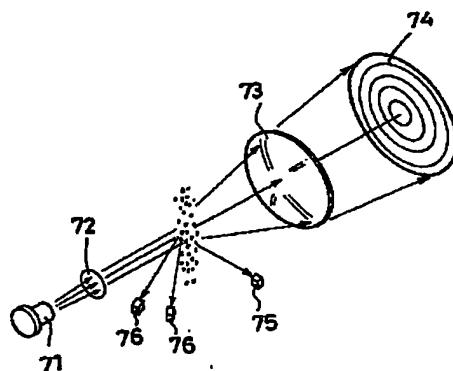
【図5】



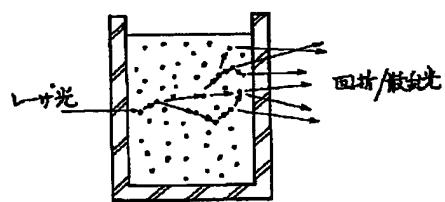
【図6】



【図7】



【図8】



【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第6部門第1区分

【発行日】平成10年(1998)7月31日

【公開番号】特開平8-178825

【公開日】平成8年(1996)7月12日

【年通号数】公開特許公報8-1789

【出願番号】特願平6-324257

【国際特許分類第6版】

G01N 15/02

【F I】

G01N 15/02 A

【手続補正書】

【提出日】平成8年10月30日

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 分散状態の被測定粒子群にレーザ光を照射することによって得られる回折／散乱光の空間強度分布を測定し、その測定結果から被測定粒子群の粒度分布を算出する装置において、レーザ光を照射すべく被測定粒子群を収容する試料セルが、2枚のガラス板と、これらを照射レーザ光の光軸に対して交差させた状態で着脱\*

$$s = A q \quad \dots \dots (1)$$

ただし、sは光強度分布ベクトル、qは粒度分布(頻度分布%)ベクトル、

Aは変換係数行列で、

$$s = \begin{vmatrix} s_1 \\ s_2 \\ \vdots \\ s_m \end{vmatrix}, \quad q = \begin{vmatrix} q_1 \\ q_2 \\ \vdots \\ q_n \end{vmatrix} \quad \dots \dots (2)$$

$$A = \begin{vmatrix} a_{1,1} & a_{1,2} & \cdots & a_{1,n} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \vdots & a_{m,1} & \cdots & a_{m,n} \end{vmatrix} \quad \dots \dots (3)$$

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0007

【補正方法】変更

【補正内容】

【0007】となる。光強度分布ベクトルの各要素  $s_i$  ( $i = 1, 2, \dots, m$ ) は、前方、側方、後方等に置かれた回折／散乱光強度検出用の各光センサ素子への入射光量である。また、粒度分布ベクトルの各要素  $q_j$  ( $j = 1, 2, \dots, n$ ) は、粒度分布測定範囲を有限とし、こ

の範囲内を  $n$  分割するとともに、最大値を  $d_1$  、最小値を  $d_m$  とし、それぞれの分割区間  $[d_j, d_{j+1}]$  を一つの粒子径  $x_j$  ( $j = 1, 2, \dots, n$ ) で代表させたときその各粒子径  $x_j$  に対応して

## 【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】変更

【補正内容】

【0009】となるように正規化（ノルマライズ）して表した相対粒子量（%）である。係数行列 A（マトリクス）は、粒度分布  $q$ （ベクトル）を、光強度分布  $s$ （ベクトル）に変換する係数行列であり、その各要素  $a_{ij}$

( $i = 1, 2, \dots, m$ ,  $j = 1, 2, \dots, n$ ) の物理的意味は、粒子径  $x_j$  の単位粒子量の粒子群によって回折／散乱した光を、光強度分布を測定するためのセンサ群のうち、最も小角度側に置かれたものから 1 番目の素子で検出した光強度である。この  $a_{ij}$  の数値は、理論的に計算することができる。これには、光源となるレーザ光の波長に比べて粒子径が十分に大きい場合には、フラウンホーファ回折理論を用いる。しかし、粒子径がレーザ波長と同等か、それより小さいサブミクロンの領域では、ミー散乱理論を用いる必要がある。フラウンホーファ回折理論は、前方微小角散乱において、粒子径が波長に比べて十分大きい場合に有効なミー散乱理論の優れた近似であると考えることができる。